

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2003年9月25日 (25.09.2003)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 03/078027 A1

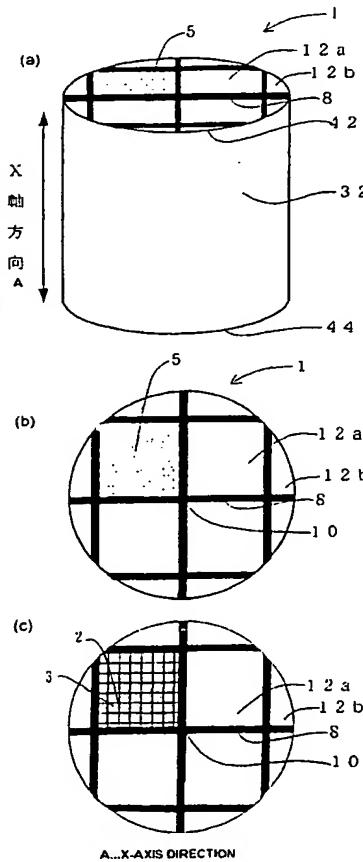
(51) 国際特許分類⁷: B01D 39/20, 46/00, F01N 3/02
(21) 国際出願番号: PCT/JP03/03323
(22) 国際出願日: 2003年3月19日 (19.03.2003)
(25) 国際出願の言語: 日本語
(26) 国際公開の言語: 日本語
(30) 優先権データ:
特願2002-75922 2002年3月19日 (19.03.2002) JP
(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 日本碍子株式会社 (NGK INSULATORS, LTD.) [JP/JP]; 〒467-8530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 Aichi (JP).

(72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 伊藤 匠人 (ITO,Tadato) [JP/JP]; 〒467-8530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 日本碍子株式会社内 Aichi (JP). 橋本 重治 (HASHIMOTO,Shigeharu) [JP/JP]; 〒467-8530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 日本碍子株式会社内 Aichi (JP).
(74) 代理人: 渡邊 一平 (WATANABE,Kazuhira); 〒111-0053 東京都台東区浅草橋3丁目20番18号 第8菊星タワーB13階 Tokyo (JP).
(81) 指定国(国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO,

[続葉有]

(54) Title: HONEYCOMB FILTER

(54) 発明の名称: ハニカムフィルター



(57) Abstract: A honeycomb filter (1), comprising a large number of flow holes partitioned by partition walls having a filtration capability and passing through in axial direction, wherein the specified number of at least two types of honeycomb segments with different averaged bulk densities are integrally connected to each other, and both end faces allowing the flow holes to pass therethrough seal the end parts of the specified flow holes different from each other so that the both end faces can provide checks, characterized in that the averaged bulk density of the honeycomb segments disposed on the outer peripheral part of the honeycomb filter is lower than that of the honeycomb segments disposed at the center thereof.

(57) 要約: 濾過能を有する隔壁により仕切られた、軸方向に貫通する多数の流通孔を有し、平均嵩密度が異なる少なくとも2種類のハニカムセグメントを所定数接合一体化し、流通孔が貫通する両端面が、それぞれが市松模様を呈するよう、所定の相異なる流通孔の端部を封じてなるハニカムフィルター1であつて、その外周部に配置されているハニカムセグメントの平均嵩密度が、中心部に配置されているハニカムセグメントの平均嵩密度よりも低いことを特徴とするハニカムフィルターである。

WO 03/078027 A1



NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(84) 指定国(広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR),

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイドスノート」を参照。

明細書

ハニカムフィルター

技術分野

本発明は、内燃機関、ボイラー等の排ガス中の微粒子捕集フィルター等に用いられるハニカムフィルターに関し、特に再生時における再生効率が高いハニカムフィルターに関する。

背景技術

内燃機関、ボイラー等の排ガス中の微粒子、特にディーゼルエンジンの排気中に含まれる微粒子の捕集フィルター等にハニカムフィルターが用いられている。

この様な目的で使用されるハニカムフィルターは、一般に、図10(a)、(b)に示すように、隔壁2により仕切られた、X軸方向に貫通する多数の流通孔3を有し、端面が市松模様状を呈するように、隣接する流通孔3が互いに反対側となる一方の端部で目封じされた構造を有する。この様な構造を有するハニカムフィルターにおいて、被処理流体は流入口側端面42が目封じされていない流通孔3、即ち流出孔側端面44で端部が目封じされている流通孔3に流入し、多孔質の隔壁2を通って隣の流通孔3、即ち流入孔側端面42で端部が目封じされ、流出孔側端面44が目封じされていない流通孔3から排出される。この際、隔壁2がフィルターとなり、例えばディーゼルエンジンから排出されるスト (スス) などが隔壁に捕捉され隔壁上に堆積する。この様な条件下で使用されるハニカムフィルターは、排気ガスの急激な温度変化や局所的な発熱によってハニカム構造内の温度分布が不均一となり、ハニカムフィルターにクラックを生ずる等の問題があった。特にディーゼルエンジンの排気中の粒子状物質を捕集するフィルター (以下DPFという) として用いられる場合には、溜まったカーボン微粒子を燃焼させて除去し再生することが必要であり、この際に局所的な高温化がおこり、再生温度の不均一化による再生効率の低下及び大きな熱応力によるクラックが発生し易いという問題があった。また、再生時の温度分布が均一でないために、フィルター全体にわたり、再生のための最適温度とすることが難しく、再生効率

の向上を図ることが困難であった。

このため、ハニカムフィルターを複数に分割したセグメントを接合材により接合する方法が提案された。例えば、米国特許第4 3 3 5 7 8 3号公報には、多数のハニカム体を不連続な接合材で接合するハニカム構造体の製造方法が開示されている。また、特公昭61-51240号公報には、セラミック材料よりなるハニカム構造のマトリックスセグメントを押し出し成形し、焼成後その外周部を加工して平滑にして接合部を形成後、その接合部に焼成後の鉱物組成がマトリックスセグメントと実質的に同じで、かつ熱膨張率の差が800°Cにおいて0.1%以下となるセラミック接合材を塗布し、必要数のマトリックスセグメントを接合の後、焼成する耐熱衝撃性回転蓄熱式が提案されている。また、1986年のSAE論文860008には、コーチェライトのハニカムセグメントを同じくコーチェライトセメントで接合したセラミックハニカム構造体が開示されている。更に特開平8-28246号公報には、所望とする数のハニカムセラミック部材を少なくとも三次元的に交錯する無機纖維、無機バインダー、有機バインダー及び無機粒子からなる弾性質シール材で相互に接着したセラミックハニカム構造体が開示されている。また、熱伝導率の高く、耐熱性の高い炭化珪素系の材料等を用いてハニカムフィルターを作ることにより局所的な高温化を防止し、熱応力によるハニカムフィルターの破損を防止することも試みられている。

しかしながらセグメント化することにより、及び／又は炭化珪素系の材料のように耐熱性の高い材料を用いることにより熱応力による破損はある程度抑制できるものの、ハニカムフィルターの外周部と中心部の温度差を解消することはできず、均一な再生による再生効率の向上という点では不十分であった。また、再生時における局所的な発熱が生じる場合もあった。

発明の開示

本発明はこのような事情に鑑みてなされたものであり、その目的とするところは、再生時の再生効率に優れたハニカムフィルターを提供することにある。

本発明者は、上記のような問題点について鋭意検討を行った結果、ハニカムフィルターの外周部において、外部への放熱により十分に温度が上昇せず、特に炭

化珪素系材料等の熱伝導率の高い材料を用いた場合にこの現象が顕著となり、外周部における再生効率が低下することを見出すとともに、外周部における嵩密度を低くすることにより再生時の外周部への放熱を抑制することができ、再生効率の向上を図ることができるを見出した。

本発明は、上記の知見に基づくものであって、濾過能を有する隔壁により仕切られた、軸方向に貫通する多数の流通孔を有する複数のハニカムセグメントが一体化されてなり、該流通孔が貫通する両端面で、所定の流通孔については一方の端部を封じ、残余の流通孔については他方の端部で目封じされているハニカムフィルターであつて、前記ハニカムフィルターの外周部に配置されているハニカムセグメントの平均嵩密度が、前記ハニカムフィルターの中心部に配置されているハニカムセグメントの平均嵩密度よりも低いことを特徴とするハニカムフィルターを提供するものである。

本発明において、外周部に配置されているハニカムセグメントの平均セル密度が中心部に配置されているハニカムセグメントの平均セル密度よりも低いことが好ましく、ハニカムフィルターの外周部に配置されているハニカムセグメントの平均隔壁厚さが前記ハニカムフィルターの中心部に配置されているハニカムセグメントの平均隔壁厚さよりも薄いことも好ましい。更に、ハニカムフィルターの熱伝導率が $10 \sim 60 \text{ W/mK}$ であることが好ましく、ハニカムフィルターが炭化珪素又は珪素-炭化珪素系複合材料からなることが好ましい。更に、ハニカムフィルターの70容量%以上が、軸方向に対する垂直断面における断面積が $900 \text{ mm}^2 \sim 10000 \text{ mm}^2$ であるハニカムセグメントから構成されていることが好ましい。

図面の簡単な説明

図1 (a) ~ (c) は、本発明のハニカムフィルターの一実施形態を示す模式図であり、(a) は模式的な斜視図、(b) は模式的な平面図、(c) は模式的な断面図である。

図2は、本発明におけるハニカムフィルターの別の実施形態を示す模式的な平面図である。

図3は、本発明におけるハニカムフィルターの更に別の実施形態を示す模式的な平面図である。

図4は、本発明におけるハニカムフィルターの更に別の実施形態を示す模式的な平面図である。

図5は、本発明におけるハニカムフィルターの更に別の実施形態を示す模式的な平面図である。

図6は、本発明におけるハニカムフィルターの更に別の実施形態を示す模式的な平面図である。

図7は、本発明におけるハニカムフィルターの更に別の実施形態を示す模式的な平面図である。

図8は、本発明におけるハニカムフィルターの更に別の実施形態を示す模式的な平面図である。

図9(a)～(b)は、実施例において作成したハニカムフィルターを模式的に示す図であり、(a)は模式的な平面図、(b)は模式的な斜視図である。

図10(a)～(b)は、従来のハニカムフィルターを示す模式的な図であり、(a)は模式的な斜視図、(b)は模式的な一部拡大図である。

発明を実施するための最良の形態

以下、図面に従って、本発明のハニカムフィルター及びその製造方法の内容を詳細に説明するが、本発明は、以下の実施形態により限定的に解釈されるものではない。なお、以下において断面とは、特に断りのない限り流通孔方向(X軸方向)に対する垂直の断面を意味する。また、図面中の各符号は、それぞれ以下の意味を有する：

1…ハニカムフィルター、2…隔壁、3…流通孔、5…目封じ材、8…接合材、
10…ハニカムフィルターの断面中心、12a…中心部に配置されているハニカムセグメント、12b…外周部に配置されているハニカムセグメント、32…ハニカムフィルターの最外周壁、42、44…端面。

図1は、本発明のハニカムフィルターの一形態を示す模式的な図であり、(a)は模式的な斜視図、(b)は模式的な平面図であり、(c)は、模式的な断面

図である。図1(a)、(b)、(c)に示すハニカムフィルター1は、濾過能を有する隔壁2により仕切られたX軸方向に貫通する多数の流通孔3を有するハニカムセグメント12a及び12bが接合材8によって一体化されており、流通孔3が貫通する両端面42及び44で、所定の流通孔については一方の端部を目封じ材5により封じ、残余の流通孔については他方の端部を目封じ材5により封じている。なお、図1及び以下の図において、隔壁2、流通孔3及び目封じ材5は一部のハニカムセグメントにのみ示したが、実際には総てのハニカムセグメントにこれらが存在することはあるまでもない。

本発明の重要な特徴は、図1に示したハニカムフィルターを例にとって説明すれば、ハニカムフィルター1の外周部に配置されているハニカムセグメント12bの平均嵩密度が中心部に配置されているハニカムセグメント12aの平均嵩密度よりも低いことである。この様な構成とすることにより、外周部における放熱、特にハニカムフィルターをDPFに用いた際の再生時における外部への放熱を抑制することができ、再生効率の向上を図ることができる。また、この様に再生効率を向上させることにより、ススの堆積を抑制し、ススが暴走的に燃焼することを防止することも期待できる。

本発明において、中心部に配置されているハニカムセグメントとは、ハニカムフィルターの断面中心10を含むか若しくは断面中心10に隣接するハニカムセグメント、又は、総ての側面が他のハニカムセグメントと接しているハニカムセグメント、即ちハニカムフィルターの最外周面をまったく構成しないハニカムセグメントをいい、外周部に配置されているハニカムセグメントとは、ハニカムフィルターの断面中心10に隣接せず、かつハニカムフィルターの最外周壁32の一部を構成するハニカムセグメントをいう。また、嵩密度とは、空孔となっていいる流通孔を含めたハニカムセグメントの単位体積当たりの質量をいう。

なお、中心部に配置されているハニカムセグメントは、中心部に配置されているハニカムセグメント全体として、上記の平均嵩密度についての条件を満たせばよく、従って、場合によつては、図3についての説明の項で、後述するように、フィルター特性の異なる少なくとも二種類からなるハニカムセグメント群をそれぞれ所定の数組み合わせて、中心部に配置させてもよい。

本発明は、これら外周部に配置されているハニカムセグメント全体の平均嵩密度が、中心部に配置されているハニカムセグメント全体の平均嵩密度よりも低いことを特徴とする。本発明において、中心部に配置されているハニカムセグメント全体の平均嵩密度に対する外周部に配置されているハニカムセグメント全体の平均嵩密度の比が1に近すぎると、本発明の効果が得られにくくなり、この比が小さすぎると外周部に配置されているハニカムセグメントの強度が不足し好ましくない。中心部に配置されているハニカムセグメント全体の平均嵩密度に対する外周部に配置されているハニカムセグメント全体の平均嵩密度の比の範囲は、好ましくは0.50～0.95、更に好ましくは、0.55～0.90、最も好ましくは0.60～0.85である。

図1(a)、(b)に示したハニカムフィルター1において、ハニカムフィルター1の断面中心10に隣接する4個のハニカムセグメント12aが中心部に配置されているハニカムセグメントであり、その周りに配置されている8個のハニカムセグメント12bが外周部に配置されているハニカムセグメントである。図1の場合において、中心部に配置されているハニカムセグメント12aのセル密度、即ち単位断面積当たりの流通孔3(セル)の数が $31\text{セル}/\text{cm}^2$ (200セル/平方インチ)であって、外周部に配置されているハニカムセグメント12bのセル密度は $15.5\text{セル}/\text{cm}^2$ (100セル/平方インチ)である。また、隔壁2の平均壁厚は何れのハニカムセグメントも約 $380\mu\text{m}$ (15ミル)である。この様に外周部に配置されているハニカムセグメントの平均セル密度を中心部に配置されているハニカムセグメントの平均セル密度よりも低くすることにより、外周部に配置されているハニカムセグメントの平均嵩密度が中心部に配置されているハニカムセグメントの平均嵩密度よりも低くすることができる。ハニカムセグメントの気孔率が45%の場合において、図1に示されるハニカムフィルターの場合、中心部に配置されている4個のハニカムセグメント12aの平均嵩密度は $0.63\text{g}/\text{cm}^3$ 、外周部に配置されている8個のハニカムセグメント12bの平均嵩密度は $0.46\text{g}/\text{cm}^3$ となる。

本発明において、セル密度に特に制限はないが、セル密度が小さすぎると、フィルターとしての強度及び有効な幾何学的表面積(GSAともいう)が不足し、

セル密度が大きすぎると、被処理流体が流れる場合の圧力損失が大きくなる。セル密度は、好ましくは、6～2000セル／平方インチ（0.9～311セル／cm²）、更に好ましくは50～1000セル／平方インチ（7.8～155セル／cm²）、最も好ましくは100～400セル／平方インチ（15.5～62.0セル／cm²）の範囲である。この範囲内において、中心部に配置されているハニカムセグメントのセル密度を外周部に配置されているハニカムセグメントのセル密度より高くすることが好ましく、これにより外周部と内周部の嵩密度を各々所望の値とすることができる。また、流通孔3の断面形状（セル形状）に特に制限はないが、製作上の観点から、三角形、四角形、六角形及びコルゲート形状のうちのいずれかであることが好ましい。

図2は本発明の別の形態におけるハニカムフィルターを示す。図2の場合において、中心部に配置されているハニカムセグメント12aの隔壁厚さが、約380μm（15ミル）であって、外周部に配置されているハニカムセグメント12bの隔壁厚さは約300μm（12ミル）である。また、セル密度は何れのハニカムセグメントも約31セル／cm²（200セル／平方インチ）である。この様に外周部に配置されているハニカムセグメントの平均隔壁厚さを中心部に配置されているハニカムセグメントの平均隔壁厚さよりも薄くすることにより、外周部に配置されているハニカムセグメントの平均嵩密度が中心部に配置されているハニカムセグメントの平均嵩密度よりも低くすることができる。ハニカムセグメントの気孔率が45%の場合において、図2に示されるハニカムフィルターの場合、中心部に配置されている4個のハニカムセグメント12aの平均嵩密度は0.63g/cm³、外周部に配置されている8個のハニカムセグメント12bの平均嵩密度は0.51g/cm³となる。

本発明において、ハニカムフィルター1の隔壁2は、フィルターの役割を果たす多孔質体であることが好ましい。隔壁2の厚さに特に制限はないが、隔壁2が厚すぎると多孔質の隔壁2を被処理流体が透過する際の圧力損失が大きくなりすぎ、隔壁2が薄すぎるとフィルターとしての強度が不足し各々好ましくない。外周部に配置されているハニカムセグメント、中心部に配置されているハニカムセグメント、その他のハニカムセグメントの隔壁厚さは何れも、好ましくは30～

2000 μm、更に好ましくは40～1000 μm、最も好ましくは50～500 μmの範囲である。この範囲内において、中心部に配置されているハニカムセグメントの壁厚を外周部に配置されているハニカムセグメントの隔壁厚さより厚くすることができるが好ましく、これにより外周部と内周部の嵩密度を各々所望の値とすることができる。

図3は、本発明の更に別の実施形態を示す図である。図3において、中心部に配置されているハニカムセグメントは、ハニカムフィルターの断面中心10に隣接する4個のハニカムセグメント12a₁、及びその周囲に配置され、ハニカムフィルターの最外周面を構成しない8個のハニカムセグメント12a₂であり、外周部のハニカムフィルターは、ハニカムフィルターの最外周面を構成する20個のハニカムフィルター12bである。図3のハニカムフィルターは、中心部に配置されている合計12個のハニカムセグメント12aの隔壁厚さが約350 μm (14ミル)、セル密度が約47セル/cm² (300セル/平方インチ) であって、外周部に配置されている合計20個のハニカムセグメント12bの隔壁厚さが約300 μm (12ミル)、セル密度が約31セル/cm² (200セル/平方インチ) である。この様に中心部に配置されているハニカムセグメントを外周部に配置されているハニカムセグメントに対して、セル密度を高くかつ隔壁厚さを厚くすることも、外周部に配置されている嵩密度を低くするために好ましい。この場合において、例えば、ハニカムセグメントの気孔率が45%の場合、中心部に配置されている12個のハニカムセグメント12aの平均嵩密度は0.70 g/cm³程度、外周部に配置されている20個のハニカムセグメント12bの平均嵩密度は0.51 g/cm³程度となる。

図4は、本発明の更に別の形態におけるハニカムフィルターを示す。図4の場合において、中心部に配置されている4個のハニカムセグメント12a₁の隔壁厚さが約380 μm (15ミル)、セル密度が約47セル/cm² (300セル/平方インチ)、中心部に配置されている20個の別のハニカムセグメント12a₂の隔壁厚さが約330 μm (13ミル)、セル密度が約31セル/cm² (200セル/平方インチ) であって、合計28個の外周部に配置されているハニカムセグメント12bの隔壁厚さが約280 μm (11ミル)、セル密度が約31

セル／ cm^2 (200セル／平方インチ) である。この場合において、ハニカムセグメントの気孔率が45%の場合、中心部に配置されている24個のハニカムセグメント12aの平均嵩密度は大凡0.58g／ cm^3 、外周部に配置されている28個のハニカムセグメント12bの平均嵩密度は大凡0.47g／ cm^3 となる。この際、中心部に配置されているハニカムセグメントの嵩密度は総て同一である必要はなく、相異なる嵩密度を有する複数のハニカムセグメントを組み合わせてもよい。この場合において、図4のハニカムセグメントのように断面中心に近いハニカムセグメントの嵩密度を高くし、ハニカムフィルターの外周側へ向かって嵩密度を順次低くしてゆくことが好ましい。外周に配置されているハニカムセグメントも同様に、全部が同一の嵩密度で構成される必要はなく、異なる嵩密度を有する複数のハニカムセグメントが組み合われてハニカムフィルターが構成されていてもよい。

図5～図8には、様々な形態からなる本発明のハニカムフィルターを示し、表1に図1～図8に示したハニカムフィルターの隔壁厚さ、セル密度及び嵩密度をまとめた。本発明のハニカムフィルターの断面形状は特に制限はなく、例えば図1等に示すような円形状、図5又は図7に示すような楕円形状、図6に示すような異形形状の他レーストラック形状、長円形状、三角、略三角、四角、略四角形状などの多角形状とすることができます。

(表 1)

図面番号	中心部に配置されたハニカムセグメント						外周部に配置された ハニカムセグメント		
	12a ₁		12a ₂		12b		平均高密度 (g/cm ³)	セル密度 (セル数/cm ²)	
	隔壁厚さ (μm)	セル密度 (セル数/cm ²)	隔壁厚さ (μm)	セル密度 (セル数/cm ²)	隔壁厚さ (μm)	セル密度 (セル数/cm ²)			
図1	380	31	—	—	0.63	380	15.5	0.46	
図2	380	31	—	—	0.63	300	31	0.51	
図3	350	47	350	47	0.70	300	31	0.51	
図4	380	47	330	31	0.58	280	31	0.47	
図5	380	47	—	—	0.75	380	31	0.69	
図6	380	31	—	—	0.63	300	31	0.51	
図7	380	31	—	—	0.63	300	31	0.51	
図8	350	47	350	47	0.70	300	31	0.51	

本発明において、ハニカムフィルターの熱伝導率に特に制限はないが、熱伝導率が高すぎると本発明のハニカムフィルターであっても放熱が大きすぎて、再生時に十分に温度が上昇せず再生効率が低下するため好ましくない。また、熱伝導率が低すぎると、すすを燃焼させてハニカムフィルターを再生させる際に、局所的な高温化がおこり、結果として、大きな熱応力によるクラックが発生し易いという問題がある。ハニカムフィルターの熱伝導率は、40°Cにおいて、好ましくは10～60W/mK、更に好ましくは20～55W/mK、最も好ましくは25～50W/mKである。

本発明において、ハニカムフィルターの主成分は、強度、耐熱性等の観点から、コーチェライト、ムライト、アルミナ、スピネル、炭化珪素、炭化珪素－コーチェライト系複合材料、珪素－炭化珪素系複合材料、窒化珪素、リチウムアルミニウムシリケート、チタン酸アルミニウム、Fe-Cr-Al系金属及びこれらの組み合わせよりなる群から選ばれる少なくとも1種の材料からなることが好ましいが、上記熱伝導率の範囲に入り、耐熱性が高いという点で、炭化珪素や珪素－炭化珪素系複合材料が本発明のハニカムフィルターに特に適している。ここで、「主成分」とは、ハニカムフィルターを構成する材料の50質量%以上、好ましくは70質量%以上、更に好ましくは80質量%以上を構成するものを意味する。また、本発明において、ハニカムフィルター1が金属珪素(Si)と炭化珪素(SiC)とからなる場合、ハニカムフィルター1のSi/(Si+SiC)で規定されるSi含有量が少なすぎるとSi添加の効果が得られず、50質量%を超えるとSiCの特徴である耐熱性、高熱伝導性の効果が得られない。Si含有量は、5～50質量%であることが好ましく、10～40質量%であることが更に好ましい。

本発明のハニカムフィルターを構成する各ハニカムセグメントの大きさに制限はないが、各セグメントが大きすぎると、熱応力による破損の問題が生じ、小さすぎると各セグメントの製造や接合による一体化が煩雑となり好ましくない。好ましいハニカムセグメントの大きさは、流通孔3の垂直方向における断面積、即ち図1におけるX軸方向に対する垂直断面の断面積が900mm²～10000mm²、更に好ましくは更に好ましくは950mm²～5000mm²、最も好まし

くは $1000\text{ mm}^2 \sim 3500\text{ mm}^2$ であり、ハニカムフィルターの70容量%以上が、この大きさのハニカムセグメントから構成されていることが好ましい。ハニカムセグメントの形状に特に制限はないが、図1～8に示すように断面形状が四角形状、即ちハニカムセグメントが四角柱状であるものを基本形状とし、図1～8に示すように一体化した場合のハニカムフィルターの形状に合わせて外周側のハニカムセグメントの形状を適宜選択することができる。

本発明のハニカムフィルターは、複数のハニカムセグメントが一体化されてなるものであるが、その際に接合材8を用いて一体化することができる。好ましい接合材は、前述のハニカムフィルターの主成分として好適に用いられる材料から選ぶことができる。また、接合材8とハニカムセグメント12との熱膨張係数の差が大きすぎると加熱・冷却時において接合部に熱応力が集中するため好ましくない。接合材とハニカムセグメントとの 20°C から 800°C までの熱膨張係数の差は、好ましくは $1 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$ である。

本発明のハニカムフィルターは、所定の流通孔については一方の端部を封じ、残余の流通孔については他方の端部を封じてなるが、端部を封じるために用いる材料としては、上述のハニカムフィルターに好適に用いることができるセラミックス又は金属を好適に用いることができる。

本発明のハニカムフィルターを、触媒担体として内燃機関等の熱機関若しくはボイラー等の燃焼装置の排気ガスの浄化、又は液体燃料若しくは气体燃料の改質に用いようとする場合、本発明のハニカムフィルターに触媒、例えば触媒能を有する金属を担持させることが好ましい。触媒能を有する金属の代表的なものとしては、Pt、Pd、Rhが挙げられ、これらのうちの少なくとも1種をハニカムフィルターに担持させることが好ましい。

次に本発明のハニカムフィルターの製造方法を説明する。

ハニカムフィルターの原料粉末として、前述の好適な材料、例えば炭化珪素粉末を使用し、これにバインダー、例えばメチルセルロース及びヒドロキシプロポキシルメチルセルロースを添加し、更に界面活性剤及び水を添加し、可塑性の坏土を作製する。この坏土を押出成形することにより、所定の隔壁厚さ及びセル密度を有するハニカムセグメントを得る。

これを、例えばマイクロ波及び熱風で乾燥後、端面が市松模様状を呈するようには、隣接する流通孔3が互いに反対側となる一方の端部でハニカムフィルターの製造に用いた材料と同様の材料で目封じし、更に乾燥した後、例えばN₂雰囲気中で加熱脱脂し、その後Ar等の不活性雰囲気中で焼成することにより本発明のハニカムセグメントを得、得られたセグメントを所定数使用して、例えばセラミックスセメントを用いて接合した後、200°Cで乾燥硬化し、ハニカムフィルターを得ることができる。

この様にして製造されたハニカムフィルターに触媒を担持させる方法は、当業者が通常行う方法でよく、例えば触媒スラリーをウォッシュコートして乾燥、焼成することにより触媒を担持させることができる。

(実施例)

以下、本発明を実施例に基づいて更に詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

(実施例1)

原料として、SiC粉75質量%及び及び金属Si粉25質量%の混合粉末を使用し、これにメチルセルロース及びヒドロキシプロポキシルメチルセルロース、界面活性剤及び水を添加して、可塑性の坏土を作製した。この坏土を押出成形し、マイクロ波及び熱風で乾燥して隔壁の厚さが380μm、セル密度が約31.0セル/cm²(200セル/平方インチ)、嵩密度が0.63g/cm³であって、断面が一辺35mmの正方形、長さが152mmのハニカムセグメントを得た。これを、端面が市松模様状を呈するように、隣接する前記流通孔が互いに反対側となる一方の端部でハニカムフィルターの製造に用いた材料と同様の材料で目封じして、乾燥させた後、N₂雰囲気中約400°Cで脱脂し、その後Ar不活性雰囲気中で約1550°Cで焼成して、Si結合SiCのハニカムフィルターのセグメントAを得た。

同様にして、隔壁の厚さが330μm、セル密度が200セル/平方インチ(31.0セル/cm²)、嵩密度が0.55g/cm³であって、断面が一辺35mmの正方形、長さが152mmであって、Si結合SiCハニカムセグメントBを得た。

得られた4個のセグメントAと12個のハニカムセグメントBを、アルミノシリケート質、炭化珪素粉及びシリカゲルに有機及び無機のバインダーの混合物を用いて接合して200°Cで乾燥硬化した後、切削により図9(a)、(b)に示すような直径144mm、長さ152mmのDPF用の円柱状ハニカムフィルターを得た。得られたハニカムフィルターの特性を表2及び表3に示す。

(表2)

組成	SiC75%／Si25%
熱膨張係数 ($\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)	4 (40-800°C)
気孔率(%)	45
平均細孔径 (μm)	15
熱伝導率 (W/Km)	30

(表3)

No.	Aセグメント			Bセグメント		
	リブ厚さ(μm)	セル密度 (セル数/平方インチ)	嵩密度 (g/cm ³)	リブ厚さ(μm)	セル密度 (セル数/平方インチ)	嵩密度 (g/cm ³)
比較例1	380	200	0.63	380	200	0.63
比較例2	300	300	0.61	300	300	0.61
比較例3	430	150	0.61	430	150	0.61
実施例1	380	200	0.63	330	200	0.55
実施例2	380	300	0.75	280	200	0.48
実施例3	380	200	0.63	380	150	0.55
実施例4	300	300	0.61	270	300	0.55
実施例5	300	300	0.61	240	300	0.50
実施例6	300	300	0.61	300	200	0.51
実施例7	300	300	0.61	300	150	0.44
実施例8	430	150	0.61	380	150	0.55

(実施例 2 ~ 8 及び比較例 1 ~ 3)

実施例 1 と同様の方法で、実施例 1 と同様の寸法のハニカムセグメントであつて、表 3 に示す隔壁厚さ、セル密度、嵩密度のセグメントを各々作成し、実施例 1 と同様の方法で実施例 1 と同様の寸法のハニカムフィルターを各々得た。

(再生試験 1)

実施例 1 ~ 8 及び比較例 1 ~ 3 で得られた DPF 用ハニカムフィルターを、直噴式 3 リットルディーゼルエンジンの排気管に接続し、30 ppm のローディア社製 Ce 燃料添加剤を含有する軽油を用いてエンジンを運転し、10 g / リットルのススをフィルターに溜めた後、プロパンガスバーナーにてハニカムフィルターを 600 °C に昇温させ、バイパスバルブの切り替えによりハニカムフィルター内を 18 % の酸素濃度とし、ススを燃焼させて、ハニカムフィルターの再生処理を開始させた。再生処理開始 5 分後に 150 °C に降温させた後、残存するススの重量を測定し再生効率を算出した。この結果を表 4 に示す。実施例 1 ~ 8 で得られた本発明のハニカムフィルターの再生効率が比較例 1 ~ 3 で得られたハニカムフィルターの再生効率よりも明らかに高いことがわかる。

(表 4)

No.	再生効率(重量%)
比較例1	73
比較例2	79
比較例3	67
実施例1	81
実施例2	88
実施例3	80
実施例4	91
実施例5	95
実施例6	90
実施例7	91
実施例8	78

(実施例 9 ~ 11 及び比較例 4 ~ 6)

表 5 に示す原料を用いて、実施例 1 と同様の方法で、実施例 1 と同様の寸法の

ハニカムセグメントであって、表5に示す隔壁厚さ、セル密度、嵩密度のセグメントを各々作成し、実施例1と同様の方法で実施例1と同様の寸法のハニカムフィルターを各々得た。ここで、表5に示すSi結合SiCは、実施例1～8で用いた材料と同一である。

(再生試験2)

実施例9～11及び比較例4～6で得られたハニカムフィルターを用いて再生試験1と同様の試験を行い、その結果を表5に示した。表5より、熱伝導率が20W/mKである窒化珪素又は熱伝導率が60W/mKである再結晶SiCを材料として用いても本発明のハニカムフィルターは良好な再生効率を示した。

(表5)

No.	セグメント材質	熱伝導率 (W/mK、40°C)	Aセグメント			Bセグメント			再生効率 (%)
			リフ'厚さ (μm)	セル密度 (セル数/平方インチ)	嵩密度 (g/cm ³)	リフ'厚さ (μm)	セル密度 (セル数/平方インチ)	嵩密度 (g/cm ³)	
比較例4	再結晶SiC	60	380	200	0.67	380	200	0.67	53
実施例9	再結晶SiC	60	380	200	0.67	330	200	0.59	75
比較例5	Si結合SiC	30	380	200	0.63	380	200	0.63	73
実施例10	Si結合SiC	30	380	200	0.63	330	200	0.55	81
比較例6	窒化珪素質	20	380	200	0.66	380	200	0.66	74
実施例11	窒化珪素質	20	380	200	0.66	330	200	0.58	86

産業上の利用可能性

以上述べてきたように本発明のハニカムフィルターは、外周部に配置されているハニカムセグメントの平均嵩密度が、中心部に配置されているハニカムセグメントの平均嵩密度よりも低いので、良好な再生効率を示す。従って、内燃機関、特に、ディーゼルエンジン用微粒子捕集用フィルターとしての利用が期待される。

請 求 の 範 囲

1. 濾過能を有する隔壁により仕切られた、軸方向に貫通する多数の流通孔を有する複数のハニカムセグメントが一体化されてなり、該流通孔が貫通する両端面で、所定の流通孔については一方の端部を封じ、残余の流通孔については他方の端部を封じてなるハニカムフィルターであつて、前記ハニカムフィルターの外周部に配置されているハニカムセグメントの平均嵩密度が、前記ハニカムフィルターの中心部に配置されているハニカムセグメントの平均嵩密度よりも低いことを特徴とするハニカムフィルター。
2. 前記外周部に配置されているハニカムセグメントの平均セル密度が前記中心部に配置されているハニカムセグメントの平均セル密度よりも低いことを特徴とする請求の範囲第1項に記載のハニカムフィルター。
3. ハニカムフィルターの外周部に配置されているハニカムセグメントの平均隔壁厚さが前記ハニカムフィルターの中心部に配置されているハニカムセグメントの平均隔壁厚さよりも薄いことを特徴とする請求の範囲第1項又は第2項に記載のハニカムフィルター。
4. 热伝導率が $10 \sim 60 \text{ W/mK}$ であることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第3項の何れか1項に記載のハニカムフィルター。
5. ハニカムフィルターが炭化珪素又は珪素-炭化珪素系複合材料からなることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第4項の何れか1項に記載のハニカムフィルター。
6. ハニカムフィルターの70容量%以上が、軸方向に対する垂直断面における断面積が $900 \text{ mm}^2 \sim 10000 \text{ mm}^2$ であるハニカムセグメントから構成されていることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項の何れか1項に記載のハニカムフィルター。

1 / 6

図 1 (a)

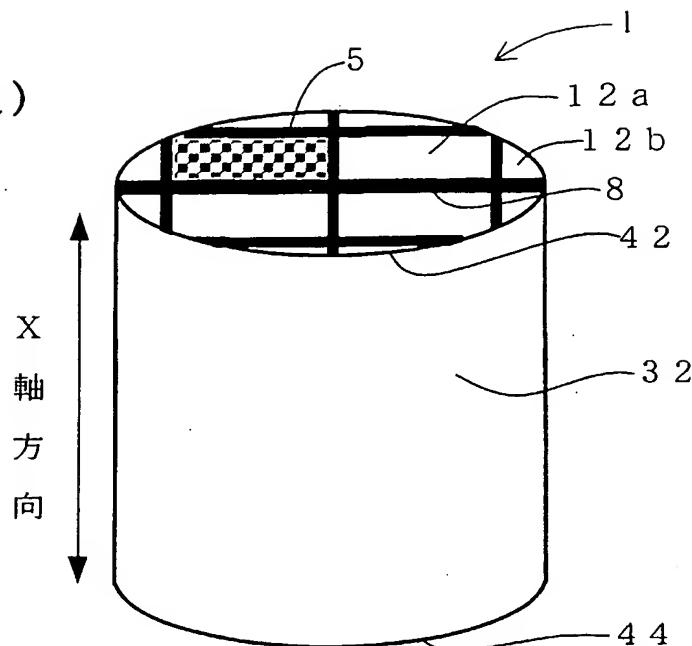


図 1 (b)

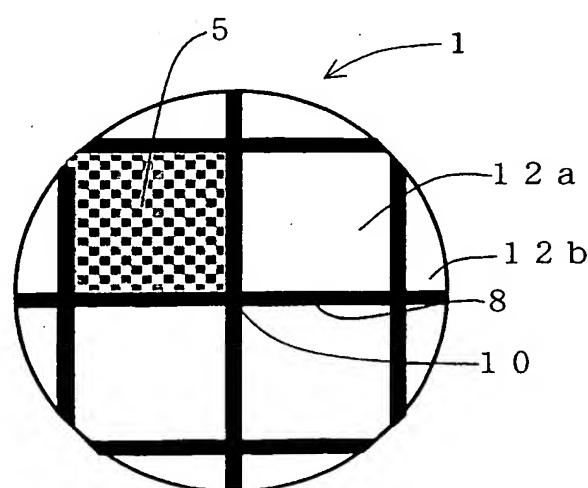
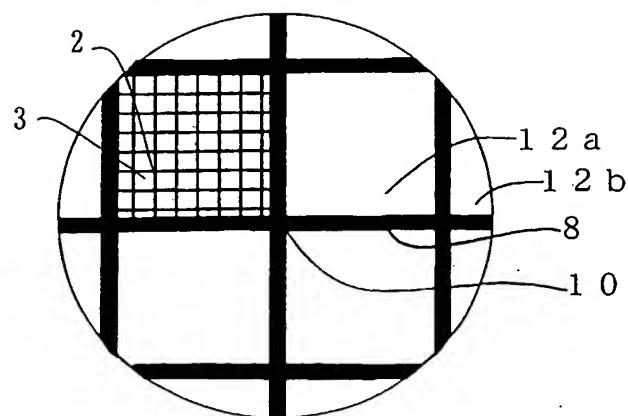


図 1 (c)



2 / 6

図 2

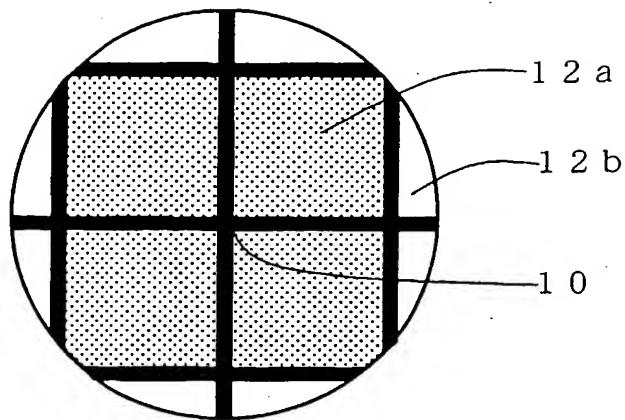
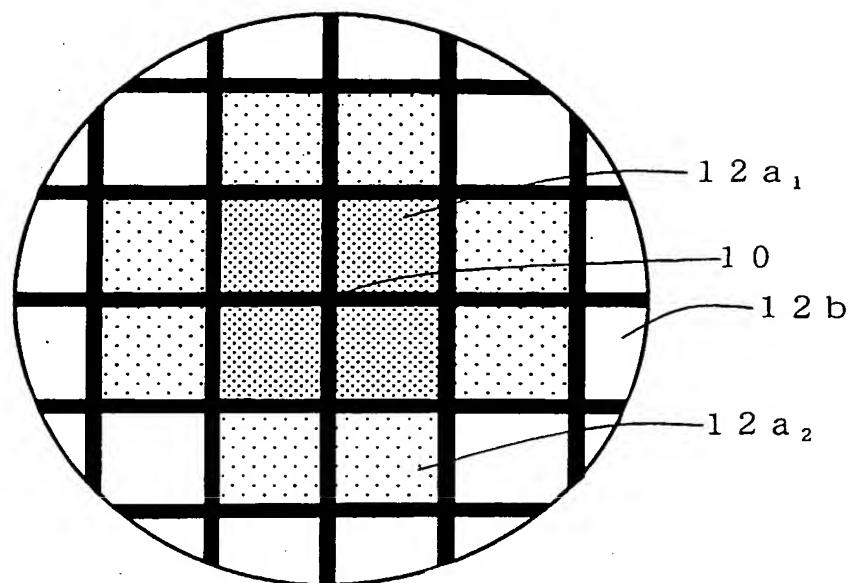


図 3



3 / 6

図 4

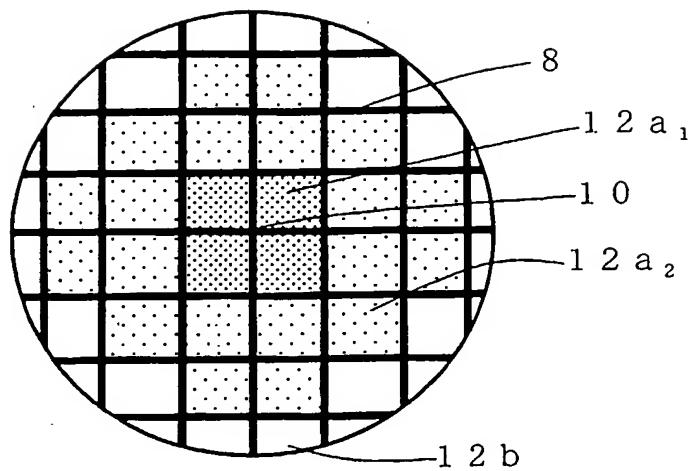
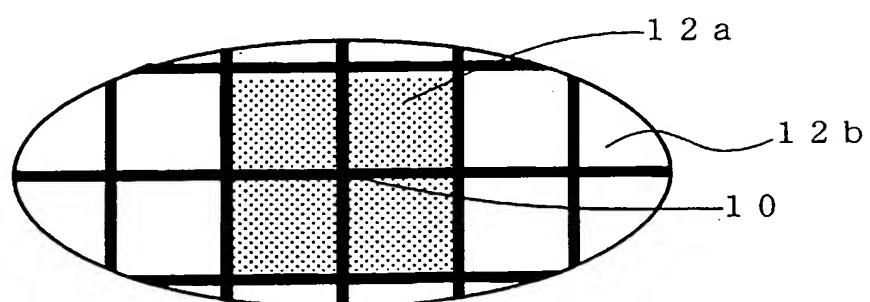


図 5



4 / 6

図 6

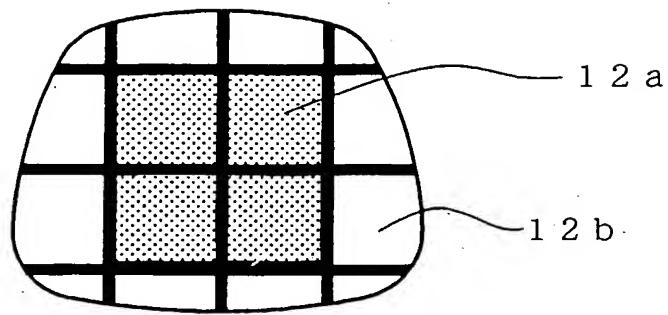


図 7

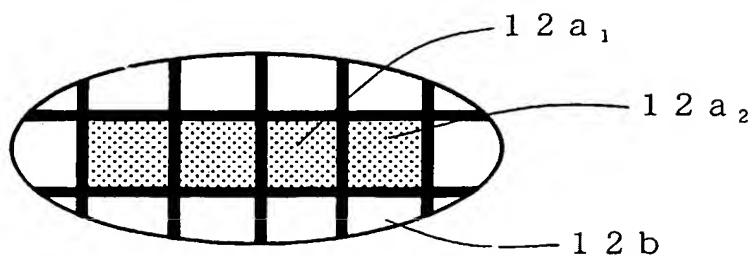
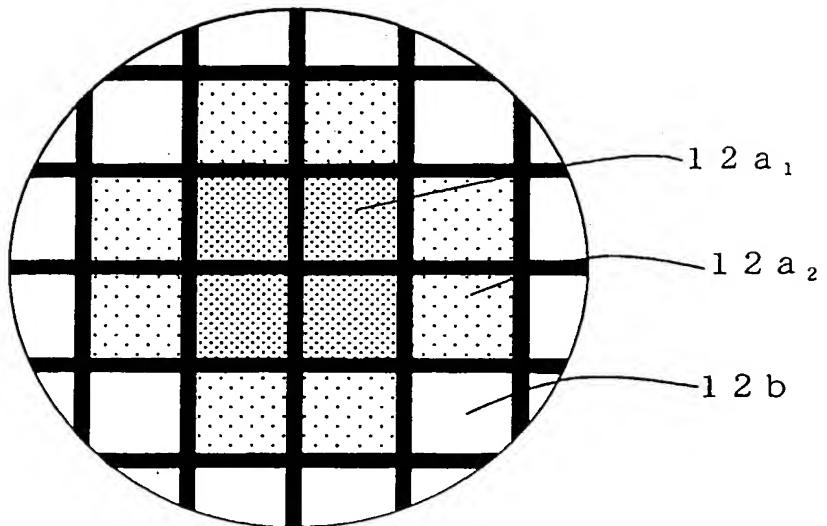


図 8



5 / 6

図 9 (a)

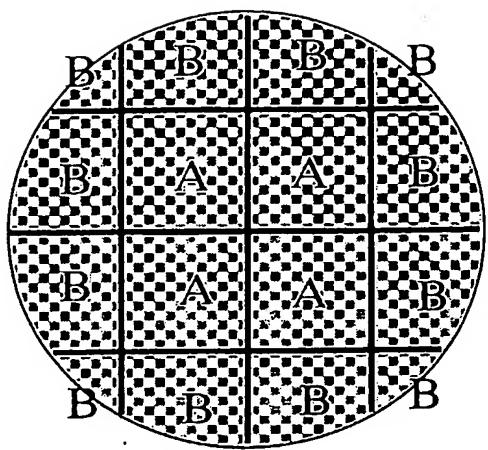


図 9 (b)

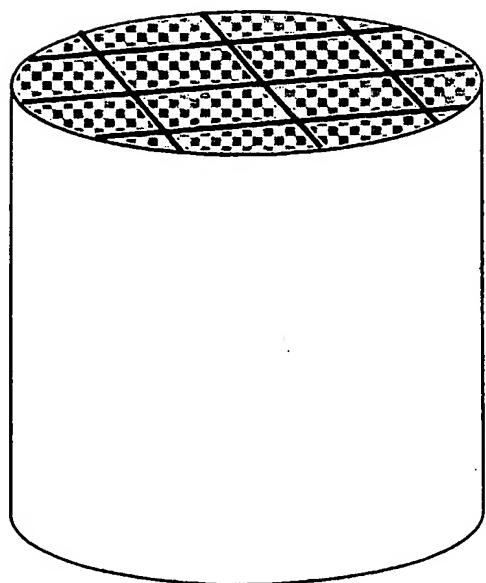


図 10 (a)

6 / 6

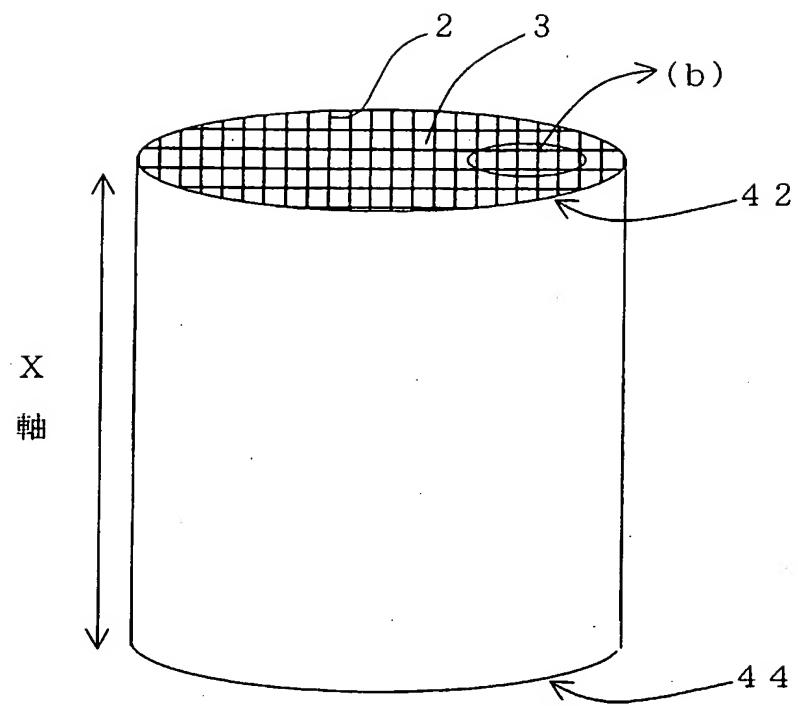
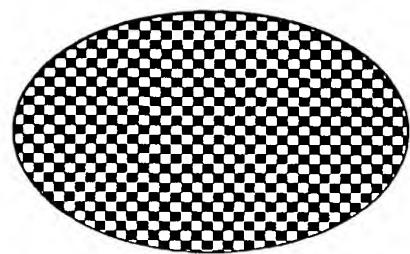


図 10 (b)



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/03323

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ B01D39/20, B01D46/00, F01N3/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ B01D39/20, B01D46/00, F01N3/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
 Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2003
 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2003 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPI

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 046806/1989 (Laid-open No. 139319/1990) (Nissan Diesel Motor Co., Ltd.), 21 November, 1990 (21.11.90), Claims; page 5, line 12 to page 8, line 15; Fig. 2 (Family: none)	1,2
X	Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 191575/1987 (Laid-open No. 095518/1989) (NGK Spark Plug Co., Ltd.), 23 June, 1989 (23.06.89), Claims; page 4, line 20 to page 10, line 7; Figs. 1, 2 (Family: none)	1,3,5

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
03 June, 2003 (03.06.03)

Date of mailing of the international search report
17 June, 2003 (17.06.03)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Faxsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/03323

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,X	JP 2002-292225 A (NGK Insulators, Ltd.), 08 October, 2002 (08.10.02), Claims; page 6, left column, Par. No. [0035] (Family: none)	1,3,5
P,X	JP 2003-117320 A (NGK Insulators, Ltd.), 22 April, 2003 (22.04.03), Claims; page 7, right column, Par. No. [0041] to page 8, left column, Par. No. [0048] (Family: none)	1-6

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' B01D39/20, B01D46/00, F01N3/02

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' B01D39/20, B01D46/00, F01N3/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1926-1996
日本国公開実用新案公報	1971-2003
日本国登録実用新案公報	1994-2003
日本国実用新案登録公報	1996-2003

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	日本国実用新案登録出願1-046806号(日本国実用新案出願公開2-139319号)の願書に添付された明細書及び図面のマイクロフィルム(日産ディーゼル工業株式会社), 1990.11.21, 実用新案登録請求の範囲, 第5頁第12行 -第8頁第15行, 第2図, (ファミリーなし)	1, 2

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

03.06.03

国際調査報告の発送日

17.06.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員)

新居田 知生

4Q 8618

電話番号 03-3581-1101 内線 3466

C(続き)	関連すると認められる文献	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	日本国実用新案登録出願62-191575号(日本国実用新案出願公開1-095518号)の願書に添付された明細書及び図面のマイクロフィルム(日本特殊陶業株式会社), 1.989.06.23, 実用新案登録請求の範囲, 第4頁第20行 -第10頁第7行, 第1, 2図, (ファミリーなし)	1, 3, 5
PX	JP 2002-292225 A(日本碍子株式会社), 2002.10.08, 特許請求の範囲, 第6頁左欄【0035】 (ファミリーなし)	1, 3, 5
PX	JP 2003-117320 A(日本碍子株式会社), 2003.04.22, 特許請求の範囲, 第7頁右欄【0041】 -第8頁左欄【0048】, (ファミリーなし)	1-6